

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

08.12.2004

別紙添付の書類は下記の出願書類の謄本に相違ないことを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2004年 7月16日

出 願 番 号  
Application Number:

PCT/JP2004/010568

出 願 人  
Applicant(s):

電気化学工業株式会社  
五十嵐 厚樹  
宮井 明  
渡辺 祥二郎  
須崎 純一

2005年 1月13日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証平 16-500611

受理官庁用写し

DK-234-PCT

1/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用)

0	受理官庁記入欄	PCT/JP 2004/010568
0-1	国際出願番号	
0-2	国際出願日	16.7.2004
0-3	(受付印)	PCT International Application 日本国特許庁
0-4	様式 PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-SAFE [EASY mode] Version 3.50 (Build 0002.162)
0-5	申立て	
0-6	出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の登録番号	DK-234-PCT
I	発明の名称	金属蒸発発熱体及び金属の蒸発方法
II	出願人	出願人である (applicant only)
II-1	この欄に記載した者は	米国を除く全ての指定国 (all designated States except US)
II-2	右の指定国についての出願人である。	電気化学工業株式会社 DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA 1008455 日本国 東京都千代田区有楽町一丁目4番1号 4-1, Yurakucho 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 1008455 Japan
II-4a	名称	
II-4a	Name:	
II-5a	あて名	
II-5a	Address:	
II-6	国名(国名)	日本国 JP
II-7	住所(国名)	日本国 JP

DK-234-PCT

2/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本 (出願用)

III-1	その他の出願人又は発明者	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 五十嵐 厚樹 IKARASHI, Kouki 8368510 日本国 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 c/o Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha Omuta Kojo, 1, Shinkai-machi, Omuta-shi, Fukuoka 8368510 Japan 日本国 JP 日本国 JP
III-1-1	この欄に記載した者は	
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	
III-1-4a	氏名(姓名)	
III-1-4m	Name (LAST, First):	
III-1-5a	あて名	
III-1-5m	Address:	
III-1-6	国籍(国名)	
III-1-7	住所(国名)	
III-2	その他の出願人又は発明者	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 宮井 明 MIYAI, Akira 8368510 日本国 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 c/o Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha Omuta Kojo, 1, Shinkai-machi, Omuta-shi, Fukuoka 8368510 Japan 日本国 JP 日本国 JP
III-2-1	この欄に記載した者は	
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	
III-2-4a	氏名(姓名)	
III-2-4m	Name (LAST, First):	
III-2-5a	あて名	
III-2-5m	Address:	
III-2-6	国籍(国名)	
III-2-7	住所(国名)	

DK-234-PCT

3/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出版用)

III-3 III-3-1 III-3-2 III-3-4a III-3-4m III-3-5a  III-3-5m  III-3-6 III-3-7	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人である。 氏名(姓) Name (LAST, First) あて名  Address:  国籍(国名) 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 渡辺 祥二郎 WATANABE, Shoujiro 8368510 日本国 福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 o/o Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha Omuta Kojo, 1, Shinkai-machi, Omuta-shi, Fukuoka 8368510 Japan 日本国 JP 日本国 JP
III-4 III-4-1 III-4-2 III-4-4a III-4-4m III-4-5a  III-4-5m  III-4-6 III-4-7	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人である。 氏名(姓) Name (LAST, First) あて名  Address:  国籍(国名) 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) 須崎 純一 SUZAKI, Junichi 8368510 日本国 福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 o/o Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha Omuta Kojo, 1, Shinkai-machi, Omuta-shi, Fukuoka 8368510 Japan 日本国 JP 日本国 JP
IV-1 IV-1-1a IV-1-1m IV-1-2a  IV-1-2m  IV-1-3 IV-1-4	代理人又は弁護士の代表者、通知のあて者 下記の者は国際機関において右 のごとく出願人のために行動する。 氏名(姓) Name (LAST, First) あて名  Address:  電話番号 ファクシミリ番号	代理人 (agent) 泉名 謙治 SENMYO, Kenji 1010042 日本国 東京都千代田区神田東松下町38番地 鳥本鋼業ビル Torimoto Kogyo Bldg., 38, Kanda-Higashimatsushitacho, Chiyoda-ku, Tokyo 1010042 Japan 03-3256-1397 03-5296-7236

DK-234-PCT

4/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用)

IV-2	その他の代理人	筆頭代理人と同じあて名を有する代理人 (additional agent(s) with the same address as first named agent)	
IV-2-1a	氏名 (Name(s))	小川 利春; 山本 量三 OGAWA, Toshiharu; YAMAMOTO, Ryozo	
V	国の指定		
V-1	この願書を用いてされた国際出願は、規則 4.9(a)に基づき、国際出願の時点での指定さ れる全てのPCT締約国を指定し、取得しうる あらゆる種類の保護を求め、及び該当する 場合には他と国内特許の両方を求める 出願と見なされる。		
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張 出願日	2003年 11月 20日 (20. 11. 2003)	
VI-1-1	出願日	2003-390344	
VI-1-2	出願番号	日本国 JP	
VI-1-3	国名		
VI-2	先の国内出願に基づく優先権主張 出願日	2004年 01月 15日 (15. 01. 2004)	
VI-2-1	出願日	2004-008217	
VI-2-2	出願番号	日本国 JP	
VI-2-3	国名		
VII-1	特定された国際調査機関(ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)	
VIII	申立て	申立て数	
VIII-1	発明者の特定に関する申立て	-	
VIII-2	出願し及び特許を与えられる国際出 願日における出願人の資格に関する 申立て	-	
VIII-3	先の出願の優先権を主張する国際出 願日における出願人の資格に関する 申立て	-	
VIII-4	発明者である旨の申立て(米国の指定国と する場合)	-	
VIII-5	不利にならない開示又は新規性喪失 の恐れに関する申立て	-	
IX	願書集	用紙の枚数	添付された電子データ
IX-1	願書(申立てを含む)	5	✓
IX-2	明細書	9	-
IX-3	請求の範囲	2	-
IX-4	要約	1	✓
IX-5	図面	4	-
IX-7	合計	21	
IX-8	添付書類	添付	添付された電子データ
IX-8	手数料計算用紙	-	✓
IX-17	PCT-SAFE 電子出願		
IX-18	その他	納付する手数料に相当す る特許印紙を貼付した書 面	
IX-18	その他	国際事務局の口座への振 込を証明する書面	
IX-19	契約書とともに提示する図の番号	!	
IX-20	国際出願の使用言語名	日本語	

DK-234-PCT

5/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用)

X-1 出願人、代理人又は代表者の署名押印

X-1-1 氏名(姓名)

X-1-2 署名者の氏名

X-1-3 権理

泉名 謙治



受理官庁記入欄

10-1 国際出願として提出された書類  
の受理の受理の日

16. 7. 2004

10-2 図面

10-2-1 受理された

10-2-2 不足図面がある

10-3 国際出願として提出された書類  
を付添する書類又は図面であつ  
てその後期間内に提出されたも  
のの受理の受理の日(訂正日)10-4 特許協力条約第11条(2)に基づ  
く必要な書類の期限内の受理の日

10-5 出願人により特定された国際調査機関

ISA/JP

10-6 調査手数料未払いにつき、国際  
調査機関に調査用写しを送付していない

国際事務局記入欄

11-1 記録原本の受理の日

## 明 細 書

## 金属蒸発発熱体及び金属の蒸発方法

## 技術分野

本発明は、金属蒸着発熱体及び金属の蒸発方法に関する。

## 背景技術

従来、金属蒸発発熱体（以下、「ポート」ともいう。）としては、例えば窒化ホウ素（BN）、窒化アルミニウム（AlN）、及び二硼化チタン（ $TiB_2$ ）を主成分とする導電性セラミックス焼結体の上面にキャビティを形成させたものが知られている（特公昭53-20256号公報）。その市販品の一例として電気化学工業社製商品名「BNコンポジットEC」がある。これの使用方法是、ポートの両端をクランプで電極につなぎ電圧を印加して発熱させ、キャビティに入れられたAl線材等の金属を溶融・蒸発させて蒸着膜を得、冷却される。このような操作は、繰り返して行われ、その間に冷熱サイクルと溶融金属による浸食を受けて寿命となる。

ポート寿命は、ポートに対する溶融金属の濡れ性に大きく関係しており、濡れ性が悪いと、溶融金属は局在化しポート本来の蒸着効率が得られないばかりか、ポートに対する溶融金属の腐食の進行速度を速め、ポート寿命が短くなる。そこで、ポートの濡れ性を確保するため、レーザー照射をする（特開2000-93788号公報）などの種々の工夫が行われているが、十分なる長寿命化は達成できていない。また、レーザー照射には多大な装置・設備が必要となる。

## 発明の開示

本発明の目的は、溶融金属に対する濡れ性を改善し、長寿命化を達成することのできる金属蒸発発熱体（ポート）及びそれを用いた金属の蒸発方法を提供することである。

(1) 二硼化チタン（ $TiB_2$ ）及び/又は二硼化ジルコニウム（ $ZrB_2$ ）と、窒化硼素（BN）と、を含有してなるセラミックス焼結体の上面に、通電方向と平行でない方向に、1又は2以上の溝を有し、かつ溝の幅が0.1~1.5mm、深さ0.03~1mm、長さ1mm以上であることを特徴とする金属蒸発発熱体。

(2) 溝を2mm以下の間隔で2以上を有してなることを特徴とする上記(1)に記載の金属蒸発発熱体。

(3) 溝の数が10以上であることを特徴とする上記(1)又は(2)に記載の金属蒸発発熱体。

(4) 通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して20～160度であることを特徴とする上記(1)～(3)のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。

(5) 交差点が少なくとも一方所あるように溝同士を交差させてなることを特徴とする上記(4)に記載の金属蒸発発熱体。

(6) セラミックス焼結体がキャビティを有するものであり、キャビティ底面及び/又はセラミックス焼結体の上面に、溝を有してなることを特徴とする上記(1)～(5)のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。

(7) キャビティ底面及び/又はセラミックス焼結体の上面に、複数の溝によって模様が描かれていることを特徴とする上記(1)～(6)のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。

(8) 模様の占有面積率が、キャビティを有するものについてはキャビティ底面積に対して、キャビティを有しないものについてはセラミックス焼結体の上面積に対して、それぞれ30%以上であることを特徴とする上記(7)に記載の金属蒸発発熱体。

(9) 模様の占有面積率が、50%以上であることを特徴とする上記(8)に記載の金属蒸発発熱体。

(10) 模様の占有面積率が、80%以上であることを特徴とする上記(8)に記載の金属蒸発発熱体。

(11) 上記(1)～(10)のいずれかに記載の金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部に金属を接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法。

#### 図面の簡単な説明

- 図1： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図2： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図3： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図4： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図5： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図6： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図7： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図8： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図9： 本発明のポートの一例を示す斜視図。
- 図10： 本発明のポートの一例を示す斜視図。



発明を実施するための最良の形態

本発明で用いるセラミックス焼結体の組成は、二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質と、を少なくとも必須成分として含有するものである。窒化チタン、炭化珪素、炭化クロム等の導電物質や、窒化アルミニウム、窒化珪素、アルミナ、シリカ、酸化チタン等の絶縁物質は適宜含有させることができる。中でも、二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウムと、窒化硼素と、を主成分とするか、又は二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウムと、窒化硼素と、窒化アルミニウムと、を主成分とするものであることが好ましい。特に好ましくは、二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウム30~60%（「質量%」、以下、特に断りのない限り、%は質量%を表す。）と、窒化硼素70~40%と、を含むか、又は二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウム35~55%と、窒化硼素25~40%と、窒化アルミニウム5~40%とを含むものが好適である。このような組成であると、セラミックス焼結体の加工が極めて容易となる。また、セラミックス焼結体の相対密度は好ましくは90%以上、特に93%以上であることが好適である。相対密度が90%未満であると、熔融金属がセラミックス焼結体の気孔に浸食し、密度が90%未満であると、90%以上の相対密度の実現は、上記組成に10%を超えない範囲で後述の焼結助剤を添加すれば容易となる。なお、セラミックス焼結体の相対密度は、焼結体を所定の寸法の直方体に加工し、その外寸及び質量より求めた実測密度を理論密度で除することにより求められる。

本発明で用いるセラミックス焼結体は、二酸化チタン及び/又は二酸化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質とを含む混合原料粉末を成形後焼結することによって製造することができる。

原料の二酸化チタン粉末としては、金属チタンとの直接反応やチタニア等の酸化物の還元反応を利用した方法等いずれの製造法によって得られたもので良い。平均粒子径は5~25 $\mu\text{m}$ であることが好ましい。

窒化硼素粉末としては、六方晶窒化硼素又はアモルファス窒化硼素、又はこれらの混合物であることが好ましい。これは、硼砂と尿素の混合物をアンモニア雰囲気中、800℃以上で加熱する方法、硼酸又は酸化硼素と憐酸カルシウムの混合物をアンモニウム、ジシアンジアミド等の含窒素化合物を1300℃以上に加熱する方法などによって製造することができる。更には、窒化硼素粉末を窒素雰囲気中で高温加熱し、結晶性を高めたものであっても良い。窒化硼素粉末の平均粒子径は、1.0 $\mu\text{m}$ 以下、特に5 $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

窒化アルミニウム粉末は、直接窒化法、アルミナ還元法などで製造されたものでよく、平均粒子径は10 $\mu\text{m}$ 以下、特に7 $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

焼結助剤としては、アルカリ土類金属酸化物、希土類元素酸化物及び加熱に

発明を実施するための最良の形態

本発明で用いるセラミックス焼結体の組成は、二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質と、を少なくとも必須成分として含有するものである。窒化チタン、炭化珪素、炭化クロム等の導電物質や、窒化アルミニウム、窒化珪素、アルミナ、シリカ、酸化チタン等の絶縁物質は適宜含有させることができる。中でも、二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウムと、窒化硼素と、を主成分とするか、又は二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウムと、窒化硼素と、窒化アルミニウムと、を主成分とするものであることが好ましい。特に好ましくは、二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウム30～60%（質量%）、以下、特に断りのない限り、%は質量%を表す。）と、窒化硼素70～40%と、を含むか、又は二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウム35～55%と、窒化硼素25～40%と、窒化アルミニウム5～40%とを含むものが好適である。このような組成であると、セラミックス焼結体の加工が極めて容易となる。また、セラミックス焼結体の相対密度は好ましくは90%以上、特に93%以上であることが好適である。相対密度が90%未満であると、熔融金属がセラミックス焼結体の気孔に浸食し、密度が90%未満であると、熔融金属がセラミックス焼結体の気孔に浸食し、浸食が促進される。90%以上の相対密度の実現は、上記組成に10%を超えない範囲で後述の焼結助剤を添加すれば容易となる。なお、セラミックス焼結体の相対密度は、焼結体を所定の寸法の直方体に加工し、その外寸及び質量より求めた実測密度を理論密度で除することにより求められる。

本発明で用いるセラミックス焼結体は、二酸化チタン及び／又は二酸化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質とを含む混合原料粉末を成形後焼結することによって製造することができる。

原料の二酸化チタン粉末としては、金属チタンとの直接反応やチタニア等の酸化物の還元反応を利用した方法等いずれの製造法によって得られたもので良い。平均粒子径は5～25 $\mu\text{m}$ であることが好ましい。

窒化硼素粉末としては、六方晶窒化硼素又はアモルファス窒化硼素、又はこれらの混合物であることが好ましい。これは、硼砂と尿素の混合物をアンモニア雰囲気中、800℃以上で加熱する方法、硼酸又は酸化硼素と磷酸カルシウムの混合物をアンモニウム、ジシアンジアミド等の含窒素化合物を1300℃以上で加熱する方法などによって製造することができる。更には、窒化硼素粉末を窒素雰囲気中で高温加熱し、結晶性を高めたものであっても良い。窒化硼素粉末の平均粒子径は、10 $\mu\text{m}$ 以下、特に5 $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

窒化アルミニウム粉末は、直接窒化法、アルミナ還元法などで製造されたものでよく、平均粒子径は10 $\mu\text{m}$ 以下、特に7 $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

焼結助剤としては、アルカリ土類金属酸化物、希土類元素酸化物及び加熱に

よってこれらの酸化物となる化合物からなる群から選ばれる一種又は二種以上の粉末が用いられる。具体的には、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ce}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Pr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Nd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Pm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Dy}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ho}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Er}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Yb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Lu}_2\text{O}_3$ など、更には $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 等の水酸化物や、 $\text{MgCO}_3$ 等の炭酸塩等、加熱によってこれらの酸化物となる化合物などを例示することができる。焼結助剤の平均粒子径は $5\mu\text{m}$ 以下、特に $1\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

上記成分を含む混合原料粉末は、好ましくは造粒されてから、成形し焼結される。成形・焼結条件の一例をあげると、 $0.5\sim 200\text{MPa}$ の一軸加压又は冷間等方圧加压した後、 $1800\sim 2200^\circ\text{C}$ の温度下における常圧焼結又は $1\text{MPa}$ 以下の低圧焼結である。更に好ましい条件の例としては、 $1800\sim 2200^\circ\text{C}$ 、 $1\sim 100\text{MPa}$ のホットプレス又は熱間等方圧プレスである。

焼結は、黒鉛製容器、窒化硼素製容器、窒化硼素で内張した容器などに収納して行うことが望ましい。ホットプレス法では、黒鉛又は窒化硼素製スリーブ、窒化硼素で内張したスリーブなどを用いて焼結することが好ましい。

セラミックス焼結体からポートを製造するには、例えば機械加工等によって適宜形状に加工することによって行うことができる。また、本発明のポートは、セラミックス焼結体の上面のほぼ中央部にキャビティを設けることもできる。ポート形状の一例を示せば、全体寸法が縦 $100\sim 200\text{mm}$ 、幅(横) $25\sim 35\text{mm}$ 、厚み $8\sim 12\text{mm}$ の板状体である。キャビティが設けられる場合、キャビティの例は、縦 $90\text{mm}\sim 120\text{mm}$ 、幅(横) $20\sim 32\text{mm}$ 、深さ $0.5\sim 2\text{mm}$ の直方形状である。

本発明のポートは、セラミックス焼結体の上面に、また、キャビティを有するものにあつてはキャビティ底面及び/又はセラミックス焼結体の上面に、通電方向(すなわち電極と電極を結ぶ方向)と平行でない方向に、1又は2以上の溝を有するものである。これによって、通電方向と平行方向の濡れ拡がり性を更に抑制し、通電方向と直交方向への濡れ拡がり性が助長され、濡れ性が一段と向上する。

通電方向と平行でない方向の好適な角度は、図1～図10にも示されるように、通電方向に対して好ましくは $20\sim 160^\circ$ 度、特に好ましくは $60\sim 120^\circ$ 度である。溝は、好ましくは、幅が $0.1\text{mm}\sim 1.5\text{mm}$ 、深さが $0.03\text{mm}\sim 1\text{mm}$ 、長さが $1\text{mm}$ 以上であり、特に、幅が $0.3\sim 1\text{mm}$ 、深さが $0.05\sim 0.2\text{mm}$ 、長さが $10\text{mm}$ 以上の断面が矩形である線状形状が好ましい。溝の数は、1つであっても熔融金属に対する濡れ性を改善することができ、好ましくは2以上、特に10以上、更には30以上である。2以上の溝を有するものにあつては、溝の間隔は好ましくは $2\text{mm}$ 以下、特に

よってこれらの酸化物となる化合物からなる群から選ばれる一種又は二種以上の粉末が用いられる。具体的には、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{BaO}$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ce}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Pr}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Nd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Pm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Sm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Dy}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ho}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Er}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Yb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Lu}_2\text{O}_3$ など、更には $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 等の水酸化物や、 $\text{MgCO}_3$ 等の炭酸塩等、加熱によってこれらの酸化物となる化合物などを例示することができる。焼結助剤の平均粒子径は $5\mu\text{m}$ 以下、特に $1\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

上記成分を含む混合原料粉末は、好ましくは造粒されてから、成形し焼結される。成形・焼結条件の一例をあげると、 $0.5\sim 200\text{MPa}$ の軸加圧又は冷間等方圧加圧した後、 $1800\sim 2200^\circ\text{C}$ の温度下における常圧焼結又は $1\text{MPa}$ 以下の低圧焼結である。更に好ましい条件の例としては、 $1800\sim 2200^\circ\text{C}$ 、 $1\sim 100\text{MPa}$ のホットプレス又は熱間等方圧プレスである。

焼結は、黒鉛製容器、窒化硼素製容器、窒化硼素で内張した容器などに収納して行うことが望ましい。ホットプレス法では、黒鉛又は窒化硼素製スリーブ、窒化硼素で内張したスリーブなどを用いて焼結することが好ましい。

セラミックス焼結体からポートを製造するには、例えば機械加工等によって適宜形状に加工することによって行うことができる。また、本発明のポートは、セラミックス焼結体の上面のほぼ中央部にキャビティを設けることもできる。ポート形状の一例を示せば、全体寸法が縦 $100\sim 200\text{mm}$ 、幅（横） $25\sim 35\text{mm}$ 、厚み $8\sim 12\text{mm}$ の板状体である。キャビティが設けられる場合、キャビティの例は、縦 $90\text{mm}\sim 120\text{mm}$ 、幅（横） $20\sim 32\text{mm}$ 、深さ $0.5\sim 2\text{mm}$ の直方形状である。

本発明のポートは、セラミックス焼結体の上面に、また、キャビティを有するものにあつてはキャビティ底面及び／又はセラミックス焼結体の上面に、通電方向（すなわち電極と電極を結ぶ方向）と平行でない方向に、1又は2以上の溝を有するものである。これによって、通電方向と平行方向の濡れ拡がり性を更に抑制し、通電方向と直交方向への濡れ拡がり性が助長され、濡れ性が一段と向上する。

通電方向と平行でない方向の好適な角度は、図1～図10にも示されるように、通電方向に対して好ましくは $20\sim 160^\circ$ 、特に好ましくは $60\sim 120^\circ$ である。溝は、好ましくは、幅が $0.1\text{mm}\sim 1.5\text{mm}$ 、深さが $0.03\text{mm}\sim 1\text{mm}$ 、長さが $1\text{mm}$ 以上であり、特に、幅が $0.3\sim 1\text{mm}$ 、深さが $0.05\sim 0.2\text{mm}$ 、長さが $10\text{mm}$ 以上の断面が矩形である線状形状が好ましい。溝の数は、1つであっても熔融金属に対する濡れ性を改善することができるが、好ましくは2以上、特に10以上、更には30以上である。2以上の溝を有するものにあつては、溝の間隔は好ましくは $2\text{mm}$ 以下、特に

0.5~1.5mmであることが好ましい。

これらの中にあっても、溝同士を交差させ、その交差点を少なくとも一方所、好ましくは溝の数と同数以上の交差点を形成させるか、又はセラミックス焼結体の上面及び／又はキャビティ底面に、例えば円形、楕円形、菱形、矩形、月形、格子、放射状等の各種模様（平面模様）を、溝によって描くことが好ましい。模様の占有面積率としては、キャビティを有するものについてはキャビティ底面積に対して、キャビティを有しないものについてはセラミックス焼結体の上面積に対して、それぞれ好ましくは30%以上、特に50%以上、更には80%以上であることが好適である。なお、ここで、模様の占有面積率とは、最も外側に位置する溝同士を結ぶことによって形成された面積をセラミックス焼結体の上面積又はキャビティの底面積で除した値の百分率として定義される。模様の占有面積率に代わって、セラミックス焼結体の上面積又はキャビティの底面積あたりの溝の占有面積を百分率で表すと、好ましくは10%以上、特に30%以上、更には50%以上であることが好適である。

溝の加工は、例えば機械加工、サンドブラスト、ウォータージェット等の方法によって行うことができる。

本発明のポートは、溝の形成によって通電方向と平行方向の溶融金属の濡れ性が抑制される。これによって、従来の溝のないポートに比べて電極への溶融金属の到達を著しく低減することができ、金属蒸発の安定化と高効率化が可能となる。

従来のポートは、アルミニウムなどの溶融金属が側面から零れ落ちることを防止するためにキャビティが形成されているが、本発明ではキャビティとは、そのサイズや機能が異なる溝を施したものである。従って、本発明においてはキャビティは必ずしも必要ではないが、それを有するものにあつては、溝又は溝による模様は少なくともキャビティ底面に形成するのが好ましい。本発明のポートの一例を示す斜視図を図1~図10に示す。

図1のものは実施例1、図2のものは実施例3、図3のものは実施例4、図4のものは実施例5によって製造されたものである。いずれも溝によって模様が描かれており、模様の占有面積率は、図1、図2がキャビティ底面積に対しそれぞれ64%、76%であり、図3、図4がセラミックス焼結体の上面積に対しそれぞれ39%、55%である。

図5のものは、キャビティ底面に、最大長さ24mm、幅1mm、深さ0.15mmの溝50本を、長さを変え、1mm間隔幅で、通電方向に対して90度にして、楕円模様を機械加工により形成されたものである。模様の占有面積率は、キャビティ底面積に対し50%である。

図6のものは、キャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mmの溝44本

を、1mm間隔幅で、通電方向に対して45度、又は135度の「く」字状に機械加工したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し66%である。

図7のものは、キャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mmの溝50本を、1mm間隔幅で、通電方向に対して90度、又は180度の格子状に機械加工したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し60%である。

図8のものは、キャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mmの溝20本を、ポート中心部からポート端に向けて放射状に機械加工することにより形成したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し61%である。

図9のものは、キャビティ底面およびキャビティ外のポート上面に、長さ20mm、幅1mm、深さ0.15mmの溝60本を、通電方向に対して90度にして、1.5mm間隔で機械加工により形成したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し77%、セラミックス焼結体の上面積に対し67%である。

図10のものは、セラミックス焼結体の上面積に、幅1mm、深さ0.15mmの溝（長さ：両端部は27mm、中間部は23mm、中央部は19mm）60本を、通電方向に対して90度、1.5mm間隔で形成し、かつ通電方向に並行な方向には、幅1mm、深さ0.15mm、長さ130mmの溝を両縁部にそれぞれ1本、その内側中央部に、幅1mm、深さ0.15mm、長さ65mmの溝を形成したものである。模様占有面積率は、セラミックス焼結体の上面積に対し89%である。

本発明の金属の蒸発方法は、本発明のポートの溝部の一部分又は全部（溝が1本の場合には、その溝の一部である場合を含む。）に接触させてA1線材等の金属を供給し、加熱して、熔融金属と溝とを接触させながら加熱を続けるものである。これによって、対象物質に金属蒸着膜が形成される。真空加熱の条件の一例を示せば、真空度が好ましくは $1 \times 10^{-1} \sim 1 \times 10^{-3}$  Pa、温度が好ましくは1400~1600℃である。

#### 実施例

##### 実施例1

二酸化チタン粉末（平均粒子径12μm）45質量%、窒化硼素粉末（平均粒子径0.7μm）、30質量%及び窒化アルミニウム粉末（平均粒子径10μm）25質量%の混合原料粉末を黒鉛製のダイスに充填し、温度1750℃でホットプレスを行ってセラミックス焼結体（相対密度94.5%、直径200mm×高さ20mm）を製造した。このセラミックス焼結体から、長さ150mm×幅30mm×厚み10mmの直方角柱体を切り出し、その上面中央部に幅26mm×

を、1mm間隔幅で、通電方向に対して45度、又は135度の「く」状に機械加工したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し6%である。

図7のものは、キャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mmの溝50本を、1mm間隔幅で、通電方向に対して90度、又は180度の格子状に機械加工したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し6%である。

図8のものは、キャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mmの溝20本を、ポート中心部からポート端に向けて放射状に機械加工することにより形成したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し6%である。

図9のものは、キャビティ底面およびキャビティ外のポート上面に、長さ20mm、幅1mm、深さ0.15mmの溝60本を、通電方向に対して90度にして、1.5mm間隔で機械加工により形成したものである。模様占有面積率は、キャビティ底面積に対し77%、セラミックス焼結体の上面積に対し67%である。

図10のものは、セラミックス焼結体の上面積に、幅1mm、深さ0.15mmの溝（長さ：両端部は27mm、中間部は23mm、中央部は19mm）60本を、通電方向に対して90度、1.5mm間隔で形成し、かつ通電方向に並行な方向には、幅1mm、深さ0.15mm、長さ130mmの溝を両縁部にそれぞれ1本、その内側中央部に、幅1mm、深さ0.15mm、長さ65mmの溝を形成したものである。模様占有面積率は、セラミックス焼結体の上面積に対し89%である。

本発明の金属の蒸発方法は、本発明のポートの溝部の一部分又は全部（溝が1本の場合には、その溝の一部である場合を含む。）に接触させてA1線材等の金属を供給し、加熱して、溶融金属と溝とを接触させながら加熱を続けるものである。これによって、対象物質に金属蒸着膜が形成される。真空加熱の条件の一例を示せば、真空度が好ましくは $1 \times 10^{-1}$ ~ $1 \times 10^{-3}$ Pa、温度が好ましくは1400~1600℃である。

#### 実施例

##### 実施例1

二硼化チタン粉末（平均粒子径12 $\mu$ m）45質量%、窒化硼素粉末（平均粒子径0.7 $\mu$ m）、30質量%及び窒化アルミニウム粉末（平均粒子径10 $\mu$ m）25質量%の混合原料粉末を黒鉛製のダイスに充填し、温度1750℃でホットプレスを行ってセラミックス焼結体（相対密度94.5%、直径200mm×高さ20mm）を製造した。このセラミックス焼結体から、長さ150mm×幅30mm×厚み10mmの直方角柱体を切り出し、その上面中央部に幅26mm×

深さ1mm×長さ120mmのキャビティを機械加工により設けた。このキャビティ底面に、幅1mm、深さ0.15mm、長さ20mmの溝を1mm間隔幅、通電方向に対して90度にして、50本機械加工し、ポートを製造した。その概略を示す斜視図を図1に示す。

#### 実施例2

溝の寸法を、幅0.5mm、深さ0.1mm、長さ20mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 実施例3

ポートのキャビティ底面に、通電方向に対して45度にした、幅1mm、深さ0.15mm、長さ28mmの溝を1mm間隔に35本機械加工し、さらにこの溝と直交する通電方向に対して135度の傾きをもつ同形状の溝を35本交差させて機械加工したこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。その概略を示す斜視図を図2に示す。

#### 実施例4

直角方柱体の上面中央部に、キャビティを形成させることなく、直接、幅1.5mm、深さ0.2mm、長さ64.5mmの連続する直線状の溝1本により、通電方向に対して90度の傾きを持つ筋状模様に加工作したこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。その概略を示す斜視図を図3に示す。

#### 実施例5

直角方柱体の上面中央部に、キャビティを形成させることなく、直接、幅1.0mm、深さ0.15mm、長さ25mmの溝を1mm間隔で50本の溝を通電方向に対して90度にして機械加工により形成したこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。その概略を示す斜視図を図4に示す。

#### 実施例6

溝の加工をサンドブラストで行ったこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 実施例7

溝の加工をウォータージェットで行い、ポートを真空乾燥機で乾燥したこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 比較例1



直方角柱体に溝を形成させなかったこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

比較例2  
溝の寸法を、幅2.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

比較例3  
溝の寸法を、深さ2.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

比較例4  
溝の間隔を、3.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

上記の実施例及び比較例のポートの溶融金属に対する濡れ性を評価するため、ポート端部をクランプで電極につなぎポート中央部の温度が1550℃となるように印加電圧を決定し設定した。次いで、ポートに電圧を印加して加熱し、真空中 $2 \times 10^{-2}$ Paの真空中、アルミニウムワイヤーを毎分6.5g/分の速度で5分間、溝部に供給し加熱を続けた。アルミニウム供給開始5分後のポート上面を写真撮影し、赤熱部と溶融金属部の対比から濡れ面積を求め、それをキャビティを有するポートについてはキャビティ底面積で、キャビティを有しないポートについてはセラミックス焼結体の上面積で割って濡れ面積率(%)を算出した。それらの結果を表1に示す。

また、ポート寿命を評価した。すなわち、ポート中央部の温度を1500℃とし、真空中 $2 \times 10^{-2}$ Paの真空中、アルミニウムワイヤーを6.5g/分の割合で供給しながら40分間を単位サイクルとして蒸発試験を行い、この操作を繰り返し行った。そして、ポートのアルミニウム蒸発面上の浸食深さが最大3mmになったときの繰り返し回数をポートの寿命とした。それらの結果を表1に示す。

直方角柱体に溝を形成させなかったこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 比較例2

溝の寸法を、幅2.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 比較例3

溝の寸法を、深さ2.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

#### 比較例4

溝の間隔を、3.0mmとしたこと以外は、実施例1と同様にしてポートを製造した。

上記の実施例及び比較例のポートの熔融金属に対する濡れ性を評価するため、ポート端部をクランプで電極につなぎポート中央部の温度が1550℃となるように印加電圧を決定し設定した。次いで、ポートに電圧を印加して加熱し、真空中度 $2 \times 10^{-2}$ Paの真空中、アルミニウムワイヤーを毎分6.5g/分の速度で5分間、溝部に供給し加熱を続けた。アルミニウム供給開始5分後のポート上面を写真撮影し、赤熱部と熔融金属部の対比から濡れ面積を求め、それをキャビティを有するポートについてはキャビティ底面積で、キャビティを有しないポートについてはセラミックス焼結体の上面積で割って濡れ面積率(%)を算出した。それらの結果を表1に示す。

また、ポート寿命を評価した。すなわち、ポート中央部の温度を1500℃とし、真空中度 $2 \times 10^{-2}$ Paの真空中、アルミニウムワイヤーを6.5g/分の割合で供給しながら40分間を単位サイクルとして蒸発試験を行い、この操作を繰り返し行った。そして、ポートのアルミニウム蒸発面上の浸食深さが最大3mmになったときの繰り返し回数をポートの寿命とした。それらの結果を表1に示す。

表 1

	濡れ面積 (%)	侵食深さ 3mm の 時のサイクル数
実施例 1	4 1	1 2
実施例 2	4 3	1 1
実施例 3	4 1	1 2
実施例 4	4 5	1 2
実施例 5	4 7	1 3
実施例 6	4 3	1 2
実施例 7	3 9	1 1
比較例 1	2 4	9
比較例 2	2 9	8
比較例 3	2 7	9
比較例 4	2 6	9

産業上の利用可能性

本発明のボート及び金属の蒸発方法は、各種金属を例えばフィルム等に蒸着するのに用いられる。

## 請求の範囲

1. 二酸化チタン( $TiB_2$ )及び/又は二酸化ジルコニウム( $ZrB_2$ )と、窒化硼素(BN)と、を含有してなるセラミックス焼結体の上面に、通電方向と平行でない方向に1又は2以上の溝を有し、かつ溝が、幅0.1~1.5mm、深さ0.03~1mm、長さ1mm以上であることを特徴とする金属蒸発発熱体。
2. 溝を2mm以下の間隔で2以上を有してなることを特徴とする請求項1に記載の金属蒸発発熱体。
3. 溝の数が10以上であることを特徴とする請求項1又は2に記載の金属蒸発発熱体。
4. 通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して20~160度であることを特徴とする請求項1~3のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。
5. 交差点が少なくとも一方所あるように溝同士を交差させてなることを特徴とする請求項4に記載の金属蒸発発熱体。
6. セラミックス焼結体がキャビティを有するものであり、キャビティ底面及び/又はセラミックス焼結体の上面に、溝を有してなることを特徴とする請求項1~5のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。
7. キャビティ底面及び/又はセラミックス焼結体上面に、複数の溝によって模様が描かれていることを特徴とする請求項1~6のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。
8. 模様の占有面積率が、キャビティを有するものについてはキャビティ底面積に対して、キャビティを有しないものについてはセラミックス焼結体の上面積に対して、それぞれ30%以上であることを特徴とする請求項7に記載の金属蒸発発熱体。
9. 模様の占有面積率が、50%以上であることを特徴とする請求項8に記載の金属蒸発発熱体。

10. 模様の占有面積率が、80%以上であることを特徴とする請求項8に記載の金属蒸発発熱体。

11. 請求項1～10のいずれかに記載の金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部に金属を接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法。

## 要 約 書

溶融金属に対する濡れ性を改善し、長寿命化を達成することができる金属蒸発ポート及びそれを用いた金属の蒸発方法を提供する。

二硼化チタン ( $TiB_2$ ) 及び/又は二硼化ジルコニウム ( $ZrB_2$ ) と窒化硼素 (BN) を含有してなるセラミックス焼結体の上面に、通電方向と平行でない方向に、溝の1又は2以上を有してなることを特徴とする金属蒸発発熱体。この場合において、通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して  $20 \sim 160$  度であること、セラミックス焼結体がキャビティを有し、その底面に溝を形成させてなること、セラミックス焼結体の上面及び/又はキャビティ上面に複数の溝によって所望の模様が描かれていること、など好ましい。また、この金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部と金属とを接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法である。

1/4

图 1

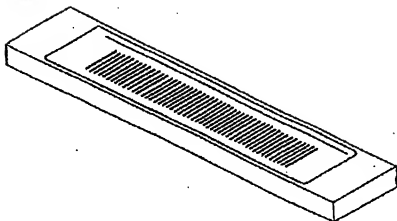


图 2

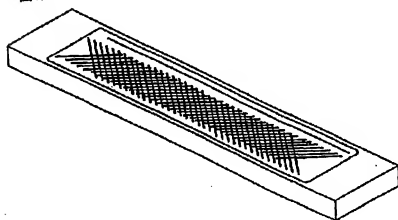
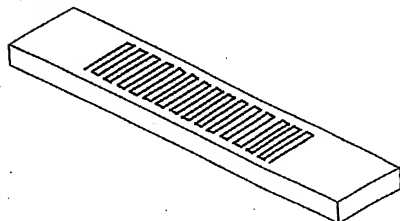


图 3



2 / 4

图 4

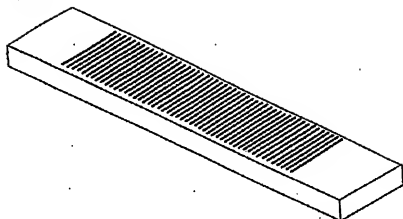


图 5

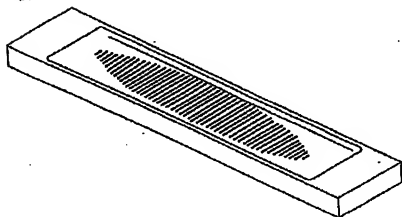
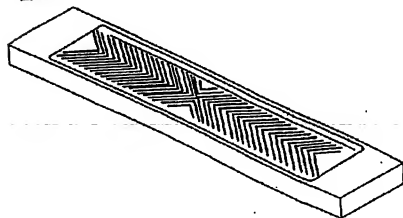


图 6





3 / 4

图 7

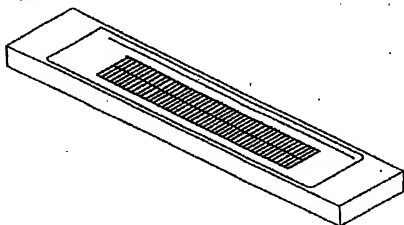


图 8

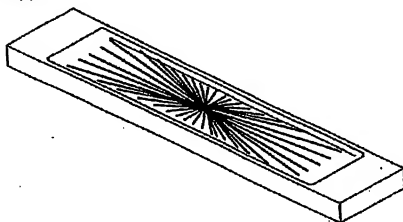
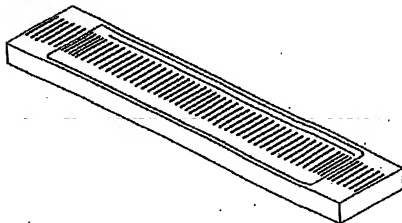
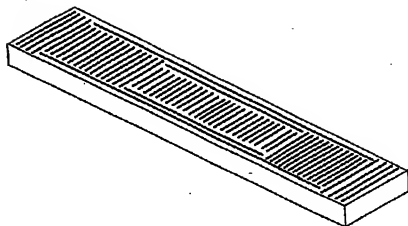


图 9



4/4

圖 10



# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/017023

International filing date: 16 November 2004 (16.11.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: PCT/JP2004/010568  
Filing date: 16 July 2004 (16.07.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 27 January 2005 (27.01.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

## **IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**